

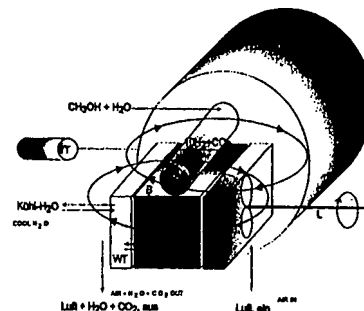
<b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> :</b> <b>H01M 8/24, 8/04, 8/06</b>	<b>A1</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 98/50975</b>  <b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 12. November 1998 (12.11.98)
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/DE98/01271 <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 4. Mai 1998 (04.05.98)  <b>(30) Prioritätsdaten:</b> 197 18 970.9      5. Mai 1997 (05.05.97)      DE  <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> ZENTRUM FÜR SONNENENERGIE- UND WASSERSTOFF-FORSCHUNG BADEN WÜRTTEMBERG GEMEINNÜTZIGE STIFTUNG [DE/DE]; Hessbrühlstrasse 21c, D-70565 Stuttgart (DE).  <b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> ROHLAND, Bernd [DE/DE]; Lehrerstrasse 3, D-89081 Ulm (DE). SCHOLTA, Joachim [DE/DE]; Wörthweg 10, D-89233 Neu-Ulm (DE). ZETTISCH, Georg [DE/DE]; Friedenstrasse 32/2, D-89073 Ulm (DE). EPPLE, Wolfgang [DE/DE]; Zwischen den Wegen 4, D-88471 Laupheim (DE). PLZAK, Wojtech [DE/DE]; Hindenburgstrasse 71, D-73207 Plochingen (DE).  <b>(74) Anwalt:</b> MERKLE, Gebhard; Ter Meer, Steinmeister & Partner, Mauerkircherstrasse 45, D-81679 München (DE).	<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> CA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> <i>Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>	

**(54) Title:** INTEGRAL PEM FUEL CELL HEATING MODULE AND THE USE THEREOF, AND PEM FUEL CELL STACKS

**(54) Bezeichnung:** INTEGRALER PEM-BRENNSTOFFZELLEN-HEIZUNGSMODUL UND DESSEN VERWENDUNG SOWIE PEM-BRENNSTOFFZELLENSTAPEL

**(57) Abstract**

The invention relates to an integral polymer electrolytic membrane (PEM) fuel cell heating module, comprising a PEM fuel cell stack, wherein each fuel cell in the stack has a polymer electrolytic membrane (3), an anode on one side of the membrane and a cathode (4) on the other side, a gas distribution layer (5) on the anode side, a gas distribution layer (7) on the cathode side, in addition to bipolar plates (6) bordering on the gas distribution layers (5, 7). The anode is configured as a three-layer anode with a CO and/or methanol vapor oxidation-selective catalyst layer (1) on the side facing away from the membrane, and an electrochemically active layer (2) on the side facing the membrane, in addition to a contact layer made of porous carbon paper between the layers (1) and (2). The gas distribution layer (7) has air ducts with open inlets and outlets. Said module also comprises a thermally insulating gas-tight, tubular, hollow jacket (M) surrounding the PEM fuel cell stack, a methanol reformer (R) which produces a hydrogen combustion gas containing CO and methanol vapor from water vapor and methanol. Water vapor production of and reformer heating are produced by a catalytic residual gas burner (B). The module also contains a circulation fan (L) arranged inside the hollow jacket (M) and circulating damp air through the air ducts (15) of the gas distribution layer (7). The inventive PEM fuel cell heating module is suitable for use in a fuel cell installation for supplying household energy.



## (57) Zusammenfassung

Integraler Polymerelektrolytmembran (PEM)-Brennstoffzellen-Heizungsmodul, umfassend einen PEM-Brennstoffzellenstapel, wobei jede Brennstoffzelle des Stapels eine Polymerelektrolytmembran (3), eine Anode auf der einen und eine Kathode (4) auf der anderen Seite der Membran, eine Gasverteilerschicht (5) auf der Anodenseite, eine Gasverteilerschicht (7) auf der Kathodenseite sowie Bipolarplatten (6), welche an die Gasverteilerschichten (5, 7) angrenzen, umfaßt, wobei die Anode als Dreischichtanode ausgebildet ist, die eine CO- und/oder Methanoldampf-oxidationsselektive Katalysatorschicht (1) auf der der Membran abgewandten Seite und eine elektrochemisch aktive Schicht (2), auf der der Membran zugewandten Seite sowie eine Kontaktschicht aus porösem Kohlepapier zwischen den Schichten (1) und (2) umfaßt, und wobei die Gasverteilerschicht (7) Luftkanäle (15) mit freien Eintritts- und Austrittsöffnungen aufweist; einen den PEM-Brennstoffzellenstapel umgebenden, thermisch isolierten, gasdichten, röhrenförmigen Hohlmantel (M); einen Methanolreformer (R), welcher aus Wasserdampf und Methanol ein CO und Methanoldampf enthaltendes Wasserstoff-Brenngas erzeugt, wobei Wasserdampferzeugung und Reformerheizung durch einen katalytischen Restgasbrenner (B) bewirkt werden; und einen innerhalb des Hohlmantels (M) angeordneten Umlüfter (L), welcher feuchte Luft durch die Luftkanäle (15) der Gasverteilerschicht (7) zirkuliert. Dererfindungsgemäße PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul eignet sich zur Verwendung in einer Brennstoffzellenanlage für die Hausenergieversorgung.

## LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

**Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul und dessen Verwendung  
sowie PEM-Brennstoffzellenstapel**

---

- 1 Die vorliegende Erfindung betrifft einen integralen Polymer-Elektrolyt-Membran (PEM)-Brennstoffzellen-Heizungsmodul und dessen Verwendung sowie einen PEM-Brennstoffzellenstapel zur Verwendung in einem solchen Heizungsmodul. Der erfindungsgemäße Heizungsmodul findet insbesondere Anwendung in einer Brennstoffzellenanlage für die Hausenergieversorgung.

Stationäre PEM-Brennstoffzellen setzen reinen Wasserstoff in Strom und nutzbare Wärme um. Sie erreichen dabei einen Gasnutzungsgrad von über 90% und einen elektrischen Wirkungsgrad von 40% bei Vollast bis 65% bei Teillast. Das Temperaturniveau der zu Heizzwecken auskoppelbaren Wärme beträgt 50-75°C.

Es ist bekannt, daß die Polymerelektrolytmembran von PEM-Brennstoffzellen durch die Reaktionsgase entweder mit externen Wassersättigern oder durch eine Selbstbefeuchtungseinrichtung befeuchtet werden muß, um sie bei Betriebstemperaturen von 60 bis 80°C vor dem Austrocknen zu bewahren. Die externe Befeuchtung erfordert einen teuren und energetisch uneffektiven, zusätzlichen apparativen Aufwand, der zudem bei schnellen Lastwechseln nicht beherrschbar ist und zu Leistungs- oder Wirkungsgradeinbußen infolge Austrocknung oder zellinterner Kondensation führt. Eine Selbstbefeuchtung durch ein in die Polymerelektrolytmembran eingebundenes Platinnetz, wie in J. Electrochem. Soc., Band 143, Nr. 12, Dezember 1996, vorgeschlagen, steigert die Kosten der Brennstoffzellen durch zu hohen Edelmetallverbrauch.

Weiterhin ist es bekannt, PEM-Brennstoffzellen für die Hausenergieversorgung mit Erdgas oder Methanol als Brennstoffe zu betreiben. Erdgas oder Methanol müssen hierbei mit Wasserdampf zu Wasserstoff und CO<sub>2</sub> reformiert und das Reformergas von Kohlenmonoxid gereinigt werden. Die hierfür erforderlichen Reinigungseinrichtungen sind im Falle der Erdgasreformierung mit einem Anteil von 12% Kohlenmonoxid im Reformergas nur bei Anlagen mit einer Leistung oberhalb 100 kW mit vertretbarem energetischem und apparativem Aufwand betreibbar. Für die Hausenergieversorgung mit PEM-Brennstoffzellen bei Betriebsleistungen von 2-20 kW kommt daher die Methanolreformierung in Frage. Obwohl die Reformiertemperatur hier nur 200°C gegenüber 700°C bei der Erdgasreformierung beträgt, enthält das Methanol-Reformergas bis etwa 10.000 ppm Methanoldampf und 1.000-2.000 ppm Kohlenmonoxid (CO), das mittels teuren Ag/Pd-Membranen abgetrennt werden muß.

- 1 CO-Gehalte bis 100 ppm können durch Zudosieren von 500 ppm O<sub>2</sub> zum Reformergas an der PEM-Brennstoffzellenanode aus Kohle /Pt-Ru bei der Betriebstemperatur der PEM-Brennstoffzelle zu CO<sub>2</sub> oxidiert werden.
- 5 Gemäß der EP 0 577 291 A1 kann die PEM-Brennstoffzellenanode auch aus zwei verschiedenen Edelmetall-Katalysatorkomponenten hergestellt und die CO-Empfindlichkeit der Anode dadurch deutlich verbessert werden. Die im Methanol-Reformergas vorhandenen 1.000-2.000 ppm CO sowie 5.000-10.000 ppm Methanoldampf können jedoch von einer derartigen PEM-Brennstoffzellenanode nicht umgesetzt
- 10 werden, sondern müssen mittels aufwendiger, vorgeschalteter Reinigungsstufen bis auf 100 ppm abgetrennt werden. Ferner reicht der im Wasserstoff vorhandene Wasserdampf, welcher mit der CO-Oxidation durch den zudosierten Überschußsauerstoff gebildet wird, zur anodenseitigen Membranbefeuchtung nicht aus. Darüber hinaus verändert der Überschußsauerstoff im Verlaufe der Betriebszeit die Anode
- 15 irreversibel, indem der Kohlenstoffträger des Katalysators oxidativ angegriffen wird.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, einen PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul vorzusehen, der ohne externe Befeuchtungseinrichtung bei schnell wechselnder Stromlast eine konstante optimale Befeuchtung sowohl der Kathodenseite als auch der Anodenseite der Polymerelektrolytmembran gewährleistet und für die Hausenergieversorgung im Größenbereich von 2-20 kW mit Methanol-Reformergas ohne zusätzliche CO-Reinigungseinrichtung eingesetzt werden kann.

- 25 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch einen integralen PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul gemäß Anspruch 1 gelöst. Vorteilhafte beziehungsweise besonders zweckmäßige Ausgestaltungen des Erfindungsgegenstandes sind in den weiteren Ansprüchen angegeben.
- 30 Der Gegenstand der Erfindung ist somit ein integraler Polymer-Elektrolyt-Membran (PEM)-Brennstoffzellen-Heizungsmodul, umfassend einen PEM-Brennstoffzellenstapel, wobei jede Brennstoffzelle des Stapels eine Polymerelektrolytmembran, eine Anode auf der einen und eine Kathode auf der anderen Seite der Membran, eine Gasverteilerschicht auf der Anodenseite, eine Gasverteilerschicht auf der Kathodenseite
- 35 te sowie Bipolarplatten, welche an die Gasverteilerschichten angrenzen, umfaßt, wobei die Anode als Dreischichtanode ausgebildet ist, die eine CO- und/oder Methanoldampf-oxidationsselektive Katalysatorschicht auf der der Membran abgewandten Seite und eine elektrochemisch aktive Schicht, auf der der Membran zugewand-

1 ten Seite sowie ein Kontaktschicht aus porösem Kohlepapier zwischen der Katalysa-  
torschicht und der elektrochemisch aktiven Schicht umfaßt, und wobei die Gasver-  
teilerschicht Luftkanäle mit freien Eintritts- und Austrittsöffnungen aufweist; ei-  
nen den PEM-Brennstoffzellenstapel umgebenden, thermisch isolierten, gasdich-  
5 ten, röhrenförmigen Hohlmantel (M); einen Methanolreformer (R), welcher aus Was-  
serdampf und Methanol ein CO und Methanoldampf enthaltendes Wasserstoff-  
Brenngas erzeugt, wobei Wasserdampferzeugung und Reformerheizung durch ei-  
nen katalytischen Restgasbrenner (B) bewirkt werden; und einen innerhalb des  
Hohlmantels (M) angeordneten Umlüfter (L), welcher feuchte Luft durch die Luftka-  
10 näle der Gasverteilerschicht zirkuliert.

Beim Betrieb des erfindungsgemäßen Heizungsmoduls wird sowohl die Kathoden-  
seite als auch die Anodenseite der Polymerelektrolytmembran optimal befeuchtet.  
Daneben gelingt eine zellinterne CO- und CH<sub>3</sub>OH-Feingasreinigung, bei der die im  
15 Methanol-Reformergas enthaltenen 1.000-2.000 ppm CO und 5.000-10.000 ppm  
CH<sub>3</sub>OH zu CO<sub>2</sub> oxidiert werden.

Beim erfindungsgemäßen Heizungsmodul ist der PEM-Brennstoffzellenstapel in ei-  
nem gasdichten, thermisch isolierten, röhrenförmigen Hohlmantel integriert, wobei  
20 die kathodenseitige Befeuchtung der Polymerelektrolytmembran mit der Reaktions-  
wasser enthaltenden Kathodenausgangsluft durch Rezirkulation zur Kathodenluft-  
Eingangsseite erfolgt. Diese Umluft-Zirkulation der feuchten Kathodenausgangs-  
luft erfolgt mit vielfacher, vorzugsweise 2- bis 3-facher Strömungsgeschwindigkeit  
gegenüber der Trockenfrischluftzufuhr beziehungsweise Feuchtluftabfuhr, die  
25 beim Betrieb des Heizungsmoduls mit der Strombelastung geregelt werden, so daß  
keine separate Luftbefeuchtung notwendig ist.

Die anodenseitige Membranbefeuchtung wird beim erfindungsgemäßen Heizungs-  
modul durch die als Dreischichtanode ausgebildete Zellanode jeder Brennstoffzelle  
30 erreicht. Die CO- und Methanoldampf-oxidationsselektive Katalysatorschicht die-  
ser Dreischichtanode oxidiert neben dem CO des Methanol-Reformergases gleich-  
zeitig so viel Wasserstoff zu Wasser beziehungsweise Wasserdampf, daß die anoden-  
seitige Befeuchtung der Membran gewährleistet ist. Wenn das Methanol-Reformer-  
gas beispielsweise 2.000 ppm CO enthält, werden gleichzeitig circa 10.000 ppm (1%)  
35 Wasserstoff zu Wasserdampf oxidiert. Die dabei auftretende Wärmeentwicklung be-  
trägt etwa 2% der gesamten Wärmeerzeugung und wird über die metallische, poröse  
Dreischicht-Anodenplatte zur metallischen Bipolarplatte abgeleitet, von der sie ka-  
thodenseitig durch die Umluft an einen an der Kathodenluft-Ausgangsseite instal-

1 lierten Wärmeübertrager abgegeben wird.

Bei einer Ausführungsform der Erfindung ist der Methanolreformer über dem PEM-Brennstoffzellenstapel und innerhalb des Hohlmantels angeordnet. Der für den Me-  
5 thanolreformer erforderliche Wasserdampf und die Heizung des Reformers werden durch katalytische Restgasverbrennung des von dem PEM-Brennstoffzellenstapel kommenden, nicht vollständig, beispielsweise nur zu 90% umgesetzten Wasser-  
stoffs bewirkt. Vorteilhafterweise ist hierbei der Methanolreformer mit katalyti-  
10 schem Restgasbrenner so angeordnet, daß er von der zirkulierenden, warmen Um-  
luft zusätzlich beheizt wird. Dies erfolgt dadurch, daß die feuchte Umluft vom Um-  
lüfter durch die kathodenseitigen Luftkanäle der PEM-Brennstoffzellen und da-  
nach über den PEM-Brennstoffzellenstapel zur Umlüfterrückseite zirkuliert wird.

Bei einer anderen Ausführungsform der Erfindung sind der Methanolreformer und  
15 der katalytische Restgasbrenner nicht innerhalb des Hohlmantels angeordnet, son-  
dern sind zusammen mit einem Reformergas-Starttank und einem elektrochemi-  
schen H<sub>2</sub>-Kompressor zu einer externen Einheit zusammengefaßt. Bei dieser Aus-  
führungsform entfällt die zusätzliche Beheizung des Reformers durch die warme  
Umluft. Andererseits kann eine verbesserte Regelcharakteristik der Reformergaser-  
20 zeugung und -speicherung im Starttank erreicht werden.

Als Umlüfter kann bei dem erfindungsgemäßen Heizungsmodul geeigneterweise ein  
Lüfter-Propeller eingesetzt werden.

25 Die oxidationsselektive Katalysatorschicht der erfindungsgemäß vorgesehenen  
Dreischichtanode besteht geeigneterweise aus einer elektrisch leitenden Matrix  
und einem oxidischen Trägermaterial, das mit metallischen, oxidationsselektiven  
Katalysatorpartikeln belegt ist. Als Material für die elektrisch leitende Matrix eignet  
sich beispielsweise ein Metallfilz, wie Nickelschwamm oder Graphit. Das oxidische  
30 Trägermaterial verstärkt die katalytische Wirkung und ist beispielsweise aus Zirko-  
niumoxid, Titandioxid, Kobaltoxid, Ceroxid, Praesodymiumoxid, Yttriumoxid, de-  
ren Mischungen oder Mischoxiden hiervon gebildet. Die spezifische Oberfläche die-  
ser oxidischen Trägermaterialien beträgt geeigneterweise 1 bis 100 m<sup>2</sup>/g, vorzugs-  
weise mehr als 10 m<sup>2</sup>/g. Die oxidationsselektiven Katalysatorpartikel sind geeigne-  
35 terweise aus Edelmetall, wie etwa Gold, Ruthenium, Rhodium oder deren Legierun-  
gen gebildet.

Die elektrochemisch aktive Schicht der Dreischichtanode ist aus Materialien gebil-

- 1 det, wie sie üblicherweise für PEM-Anoden verwendet werden.

Die Kontaktschicht aus porösem Kohlepapier zwischen der Katalysatorschicht und der elektrochemisch aktiven Schicht verhindert eine negative Beeinflussung der Lebensdauer der Katalysatorschicht durch den direkten Kontakt zwischen Anode und Katalysatorschicht. Für diese Kontaktschicht eignen sich im Handel erhältliche poröse Kohlepapiere mit Dicken von üblicherweise 20-100 µm.

Die protonenleitende Polymerelektrolytmembran besteht aus üblicherweise für PEM-Zellen verwendeten Materialien, wie sie etwa unter der Handelsbezeichnung Nafion erhältlich sind. Diese Polymermembran wird in an sich bekannter Weise auf beiden Seiten mit je einer Elektrode versehen, welche geeigneterweise aus einem katalytisch aktivierten Trägersubstrat und Bindemitteln bestehen, beispielsweise Kohlenstoffruß und Polytetrafluorethylen. Als Katalysatoren kommen an sich bekannte Materialien in Betracht, welche eine ausreichend hohe Aktivität für die Wasserstoffoxidation beziehungsweise -reduktion aufweisen, vorzugsweise Metalle und Legierungen der Platin-Gruppe.

Gegenstand der Erfindung ist ebenso die Verwendung eines wie oben beschriebenen PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmoduls in einer Brennstoffzellenanlage für die Hausenergieversorgung mit einer Betriebsleistung von typischerweise 2-20 kW.

Die Erfindung wird anhand der beiliegenden Zeichnungen, welche bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung wiedergeben, näher erläutert. Hierbei zeigen:

25

**Fig. 1** schematisch den Aufbau eines erfindungsgemäßen PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmoduls;

**Fig. 2** schematisch den Aufbau einer einzelnen PEM-Brennstoffzelle;

**Fig. 3** schematisch den Aufbau eines PEM-Brennstoffzellenstapels;

30 **Fig. 4** schematisch die Anordnung der Bipolarplattenelemente einschließlich Elektrodeneinheit; und

**Fig. 5** schematisch die Anordnung der Kühlplattenelemente.

Der in Fig. 1 gezeigte, integrale PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul besteht aus einem PEM-Brennstoffzellenstapel FC, einem Lüfter-Propeller L, Wärmeübertrager WT, Methanolreformer R, Anodenrestgasbrenner B, Reformergastank T und einem gasdichten, alles umschließenden Hohlmantel M.

1 Der PEM-Brennstoffzellenstapel besteht geeigneterweise aus 20 bis 100 elektrisch  
in Serie geschalteten und hintereinander gestapelten PEM-Brennstoffzellen. Der  
schematische Aufbau einer einzelnen Brennstoffzelle ist in Fig. 2 gezeigt. Sie umfaßt  
eine Dreischichtanode aus einer oxidationsselektiven Katalysatorschicht in Form  
5 einer porösen Anodenplatte 1 und einer Pt-Ru/C-Anode 2 sowie einer Kontakt-  
schicht (nicht gezeigt) am porösen Kohlepapier zwischen den Schichten 1 und 2, ei-  
ne Polymerelektrolytmembran 3, eine Pt/C-Kathode 4, eine metallische Gasvertei-  
lerschicht 5, eine metallische Gasverteilerschicht 7 mit Luftkanälen 15 sowie Bipolar-  
10 lar-/Kühlplatten 6. Die Luftkanäle 15 sind zur angrenzenden Bipolar-/Kühlplatte 6  
offen.

Die Fig. 3 zeigt schematisch die Anordnung des aufgebauten Brennstoffzellensta-  
pels. Der Zellenstapel besteht aus zwei Endplatten 10, welche die Verschraubungen  
für die Gas- und Kühlmittelanschlüsse sowie Anschlüsse zur Stromabführung und  
Potentialmessung (nicht gezeigt) enthalten. Die zellseitige Ausführung der Endplat-  
15 ten ist identisch mit derjenigen des Bipolarplattenelementes 6. An die Endplatte an-  
schließend folgen vier Zelleinheiten, deren Aufbau elektroden-/katalysatorseitig in  
Fig. 2 und dichtungs-/gasführungsseitig in Fig. 4 wiedergegeben ist.

Der gesamte anodenseitige Aufbau ruht auf einer ebenen Bipolarplatte 6, welche an  
20 den Rändern mit Löchern für Verschraubungen und Gas-/Kühlmitteldurchführun-  
gen versehen ist. Darauf folgt eine Gasverteilungseinheit 5, welche außen von einer  
strukturstabilen Dichtung mit einer Gasdurchführung umgeben ist. Von der Gas-  
durchführung führen Kanalöffnungen in den die Gasverteilungseinheit 5 enthal-  
tenden Innenraum. Die Dichtung 12 deckt den Randbereich der bipolaren Platte ab.  
25 Im Innenraum befindet sich die Gasverteilungseinheit 5, welche z.B. aus einem  
strukturierten Filz besteht. Die Bipolar-/Kühlplatte 6 besteht in den Randelemen-  
ten 6a (Fig. 5) zum Beispiel aus Edelstahl in der Qualität 1.4404, die Dichtung 12  
z.B. aus Silikon. Auf dieser befindet sich ein z.B. aus dem genannten Edelstahl aus-  
geführtes Stützelement 13, welches bis auf die zum Innenbereich führenden Kanäle  
30 der Dichtung 12 die gleichen Bohrungen enthält. Das Stützelement 13 ermöglicht  
eine Abdichtbarkeit der gegenüberliegenden Seite der Zelle, da mit Hilfe dieses  
Stützelements auch über den durch die Dichtung 12 gebildeten Gasdurchführun-  
gen eine Andruckkraft ausgeübt werden kann. Auf dem Stützelement 13 befindet  
sich ein Dichtungselement 14, welches die gleiche Form aufweist wie das Stützele-  
35 ment 13 und z.B. aus geblähtem Polytetrafluorethylen besteht.

Der Aufbau der Bipolarplatte mit Kühleinheit 6 ist in Fig. 5 wiedergegeben. Diese  
Einheit besteht aus zwei wie oben beschriebenen Bipolarplatten 6a, zwischen denen



- 1 sich ein Dichtungselement 6b befindet. Dieses entspricht in seinem Aufbau der be-  
schriebenen Dichtung 12, enthält jedoch von den Kanälen 11 zum Innenraum füh-  
rende Kanäle an der Stelle der zum Kühlwassertransport verwendeten Kanäle. Im  
Innenraum der Bipolarplatte mit Kühleinheit 6 befindet sich ein Stützelement 6c,  
5 welches z.B. als Titannetz ausgeführt ist.

- Nach beispielsweise einer 20-fachen Wiederholung der obengenannten Einheiten-  
abfolge schließt sich die zweite Endplatte 10 an, um den Brennstoffzellenstapel zu  
vervollständigen. Die Gas- und Kühlmitteldurchführungen sind so ausgeführt, daß  
10 für alle Gas- und Kühlmittelströme eine diagonale Strömungsrichtung resultiert.  
Das Anodenreformergas wird über Kanäle 11 in dem Stapel intern auf die einzelnen  
Zellen verteilt und die Luft wird über die seitlich offene, kanalförmige Kathodengas-  
Verteilerschicht 7 den Kathoden über den Umluftstrom zugeführt. Die poröse Kata-  
lysatorschicht 1 der Dreischichtanode besteht aus Nickelschwamm 8 und den mit  
15 Edelmetall belegten, oxidischen Katalysatorpartikeln 9 mit großer innerer Oberflä-  
che.

- Der PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul wird gestartet, indem bei Elektroener-  
gie- oder Wärmebedarf die Brennstoffzellen-Dreischichtanoden vom Reformergas-  
20 Starttank mit Brenngas versorgt und der Umluft-Propeller sowie die Frischluftzu-  
fuhr in Gang gesetzt werden. Mit einem zeitlichen Abstand von weniger als 3 Sekun-  
den wird der dem Bedarf entsprechende Strom entnommen und der Reformergas-  
strom sowie die Frischluftzufuhr diesem Strom entsprechend dem Faraday'schen  
Gesetz so über Strömungsregler eingestellt, daß zunächst 50%, nach 10 Minuten  
25 90% des Wasserstoffs und 30% des Luftsauerstoffs umgesetzt werden. Es werden  
zunächst 50%, dann 10% des umgesetzten Reformergases im katalytischen Anoden-  
restgasbrenner B umgesetzt, wodurch der Methanolreformer auf 200°C geheizt  
wird. Ist diese Temperatur erreicht, setzt eine strombedarfsgeregelte Methanol-Do-  
sierpumpe den Reformingprozeß in Gang und der Reformergas-Starttank wird abge-  
30 schaltet. Der PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul arbeitet nun dynamisch im  
wahlweise strombedarfs- oder wärmebedarfs-geführten Betrieb.

- Bei wärmebedarfs-geführtem Betrieb wird bis zum Erreichen der Soll-Vorlauftem-  
peratur am Wärmeübertrager der Strom auf Vollast (40% elektrischer Wirkungs-  
35 grad) gestellt, nachdem die Methanoldosierung und Frischluftzufuhr auf Vollast  
eingeregelt wurden. Bei Überschreiten der Soll-Vorlauftemperatur werden Strom-  
und Gaszufuhr beziehungsweise Methanolzufuhr solange auf Teillast gedrosselt,  
bis die Soll-Vorlauftemperatur eingestellt ist. Zum Einstellen einer konstanten

- 1 Vorlauftemperatur bei unterschiedlichem Wärmebedarf wird eine PID-Regelung aktiviert, die auf der modulinternen Proportionalität zwischen Strom und Vorlauftemperatur basiert. Elektrischer Überschußstrom wird in das Netz eingespeist.
- 5 Bei strombedarfs-geführtem Betrieb wird der DC-Zellstrom direkt über den AC-Stromverbrauch eingestellt. Da hier die Übergangszeiten im Sekundenbereich liegen, kann nur die Einregelung des Frischluft- und Umluftstromes zeitlich folgen, nicht aber der Methanolreformer. Deshalb wird der Reformergas-Starttank wieder als Puffer zugeschaltet. Sein ständiger Füllstand (Solldruck) wird durch einen gere-
- 10 gelten Bypassstrom vom Reformer gewährleistet. Überschußwärme kann als Heißwasser gespeichert werden.

- Die Grenzen für extremen Teillastbetrieb sind beim erfindungsgemäßen Heizungsmodul nicht mehr durch die erforderliche Befeuchtung der Membran festgelegt. Sie
- 15 sind bei wärmebedarfs-geführtem Betrieb dadurch gegeben, daß die Vorlauftemperatur bei 25% Vollast 40°C unterschreitet, weil dann keine effektive Wärmenutzung mehr möglich ist. Bei strombedarfs-geführtem Betrieb wird diese Grenze erreicht, wenn die katalytische Anoden-Restgasverbrennung nicht mehr ausreicht, um den Reformer auf 200°C zu beheizen. Durch höheren Restgasanteil kann hier der Betrieb
  - 20 bis zu 10% Vollast aufrechterhalten werden, ehe der PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul abgeschaltet und auf Netz-Restbezug umgeschaltet werden muß.

- Der PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul gemäß einer weiteren Ausführungsform der Erfindung enthält bei sonst gleichem Aufbau nicht den Methanolreformer und
- 25 den katalytischen Anoden-Restgasbrenner. Diese Aggregate sind zusammen mit dem Reformergas-Starttank und einem elektrochemischen H<sub>2</sub>-Kompressor zu einer externen Einheit zusammengefaßt. Hierbei kann der Reformer nicht durch die warme Umluft zusätzlich beheizt werden. Es wird jedoch eine verbesserte Regelcharakteristik der Reformergaserzeugung und -speicherung im Starttank erreicht.

30

35

1

**Patentansprüche**

1. Integraler Polymerelektrolytmembran (PEM)-Brennstoffzellen-Heizungsmodul, umfassend
  - 5 einen PEM-Brennstoffzellenstapel, wobei jede Brennstoffzelle des Stapels eine Polymerelektrolytmembran (3), eine Anode auf der einen und eine Kathode (4) auf der anderen Seite der Membran, eine Gasverteilerschicht (5) auf der Anodenseite, eine Gasverteilerschicht (7) auf der Kathodenseite sowie Bipolarplatten (6), welche an die Gasverteilerschichten (5, 7) angrenzen, umfaßt, wobei die Anode als Dreischichtanode ausgebildet ist, die eine CO- und/oder Methanoldampf-oxidationsselektive Katalysatorschicht (1) auf der der Membran abgewandten Seite und eine elektrochemisch aktive Schicht (2), auf der der Membran zugewandten Seite sowie eine Kontaktschicht aus porösem Kohlepapier zwischen den Schichten (1) und (2) umfaßt, und wobei die Gasverteilerschicht (7) Luftkanäle (15) mit freien Eintritts- und Austrittsöffnungen aufweist;
    - einen den PEM-Brennstoffzellenstapel umgebenden, thermisch isolierten, gasdichten, röhrenförmigen Hohlmantel (M);
    - einen Methanolreformer (R), welcher aus Wasserdampf und Methanol ein CO und Methanoldampf enthaltendes Wasserstoff-Brenngas erzeugt, wobei Wasserdampferzeugung und Reformerheizung durch einen katalytischen Restgasbrenner (B) bewirkt werden; und
    - einen innerhalb des Hohlmantels (M) angeordneten Umlüfter (L), welcher feuchte Luft durch die Luftkanäle (15) der Gasverteilerschicht (7) zirkuliert.
- 25 2. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach Anspruch 1, wobei der Methanolreformer (R) mit Restgasbrenner (B) über dem PEM-Brennstoffzellenstapel und innerhalb des Hohlmantels (M) angeordnet ist.
3. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach Anspruch 2, wobei der  
30 Methanolreformer (R) mit katalytischem Restgasbrenner (B) so angeordnet ist, daß er von der zirkulierenden, warmen Umluft zusätzlich beheizt wird.
4. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach Anspruch 1, wobei der Methanolreformer (R) mit Restgasbrenner (B) zusammen mit einem Reformergas-  
35 Starttank und einem elektrochemischen H<sub>2</sub>-Kompressor zu einer externen Einheit zusammengefaßt sind.
5. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach mindestens einem der

- 1 Ansprüche 1 bis 4, wobei am Ausgang der Luftkanäle (15) innerhalb des Hohlman-  
tels ein Kühlwasser führender Wärmeübertrager angeordnet ist, der über sein Kühl-  
wasser die Wärme des Umluftstromes aufnimmt und zu Heizzwecken so auskoppelt,  
daß die Temperaturdifferenz innerhalb des PEM-Brennstoffzellenstapels nicht  
5 mehr als etwa 10°C beträgt.
6. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach mindestens einem der  
Ansprüche 1 bis 5, wobei der Umlüfter (L) ein Lüfter-Propeller ist.
- 10 7. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach mindestens einem der  
Ansprüche 1 bis 6, wobei die oxidationsselektive Katalysatorschicht (1) der Drei-  
schichtanode eine elektrisch leitende Matrix (8) und ein oxidisches Trägermaterial,  
das mit metallischen, oxidationsselektiven Katalysatorpartikeln (9) belegt ist, um-  
faßt.
- 15 8. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach mindestens einem der  
Ansprüche 1 bis 7, wobei die Bipolarplatte (6) eine aufeinanderfolgende Anordnung  
von Einzelementen aufweist, welche insgesamt die Funktionen Gasraumtrennung  
und Gasverteilung erfüllen.
- 20 9. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach Anspruch 8, wobei die  
aufeinanderfolgenden Elemente zwischen zwei Membranen (3) bestehen aus: Dich-  
tung (14), Stützelement (13), Dichtung (12), Gasverteilungseinheit (5), Bipolarplat-  
te (6), Gasverteilungselement (7), gegebenenfalls mit integrierter Dichtung, Dich-  
25 tung (12), Stützelement (13), Dichtung (14).
10. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach Anspruch 9, wobei auf  
die Bipolarplatte (6) als Außenelement die Dichtung (12) und das Stützelement (13)  
sowie als Innenelement die Gasverteilungseinheit (5) aufsitzt.
- 30 11. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach Anspruch 9 und/oder  
10, wobei die auf der Bipolarplatte (6) aufsitzende Dichtung (12) einen größeren  
Ausschnitt als das darüberliegende Stützelement (13) aufweist, so daß der Rand des  
Gasverteilungselements (5) von dem Stützelement (13) abgedeckt wird.
- 35 12. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach mindestens einem der  
Ansprüche 1-11, wobei die Bipolarplatte (6) als Bipolar-/Kühlplatte ausgebildet ist  
und die Kühlplatte eine aufeinanderfolgende Anordnung von Einzelementen um-

- 1 faßt, welche insgesamt die Funktionen Gasraumtrennung und Kühlung erfüllen.
13. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach Anspruch 12, wobei die aufeinanderfolgenden Elemente bestehen aus: Bipolarplatte (6a), Dichtung (6b), Kontaktierungselement (6c), Bipolarplatte (6a).
- 5
14. Integraler PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmodul nach Anspruch 13, wobei auf die Bipolarplatte (6a) als Außenelement die Dichtung (6b) sowie als Innenelement das Kontaktierungselement (6c) aufsitzt.
- 10
15. PEM-Brennstoffzellenstapel zur Verwendung in einem PEM-Brennstoffzellenstapel-Heizmodul und nach mindestens einem der Ansprüche 1-14, wobei die Bipolarplatte (6) eine aufeinanderfolgende Anordnung von Einzelementen aufweist, welche insgesamt die Funktionen Gasraumtrennung und Gasverteilung erfüllen.
- 15
16. PEM-Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 15, wobei die aufeinanderfolgenden Elemente zwischen zwei Membranen (3) bestehen aus: Dichtung (14), Stützelement (13), Dichtung (12), Gasverteilungseinheit (5), Bipolarplatte (6), Gasverteilungselement (7), gegebenenfalls mit integrierter Dichtung, Dichtung (12), Stützelement (13), Dichtung (14).
- 20
17. PEM-Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 16, wobei auf die Bipolarplatte (6) als Außenelement die Dichtung (12) und das Stützelement (13) sowie als Innenelement die Gasverteilungseinheit (5) aufsitzt.
- 25
18. PEM-Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 16 und/oder 17, wobei die auf der Bipolarplatte (6) aufsitzende Dichtung (12) einen größeren Ausschnitt als das darüberliegende Stützelement (13) aufweist, so daß der Rand des Gasverteilungselements (5) von dem Stützelement (13) abgedeckt wird.
- 30
19. PEM-Brennstoffzellenstapel nach mindestens einem der Ansprüche 15 bis 18, wobei die Bipolarplatte (6) als Bipolar-/Kühlplatte ausgebildet ist und die Kühlplatte eine aufeinanderfolgende Anordnung von Einzelementen umfaßt, welche insgesamt die Funktionen Gasraumtrennung und Kühlung erfüllen.
- 35
20. PEM-Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 19, wobei die aufeinanderfolgenden Elemente bestehen aus: Bipolarplatte (6a), Dichtung (6b), Kontaktierungselement (6c), Bipolarplatte (6a).

- 1 21. PEM-Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 20, wobei auf die Bipolarplatte (6a) als Außenelement die Dichtung (6b) sowie als Innenelement das Kontaktierungselement (6c) aufsitzt.
- 5 22. Verwendung eines PEM-Brennstoffzellen-Heizungsmoduls nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 14 in einer Brennstoffzellenanlage für die Hausenergieversorgung.

10

15

20

25

30

35

Fig. 1

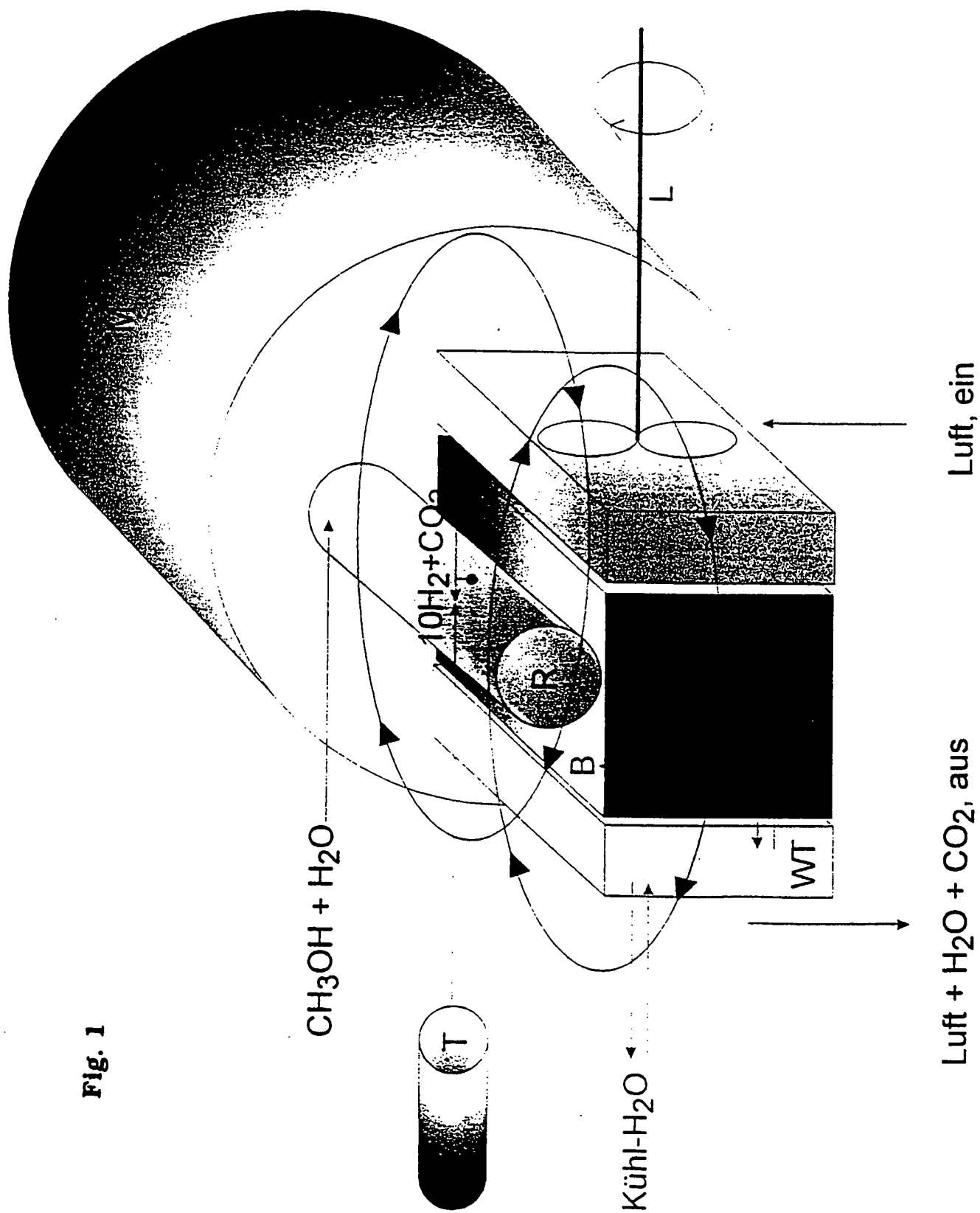
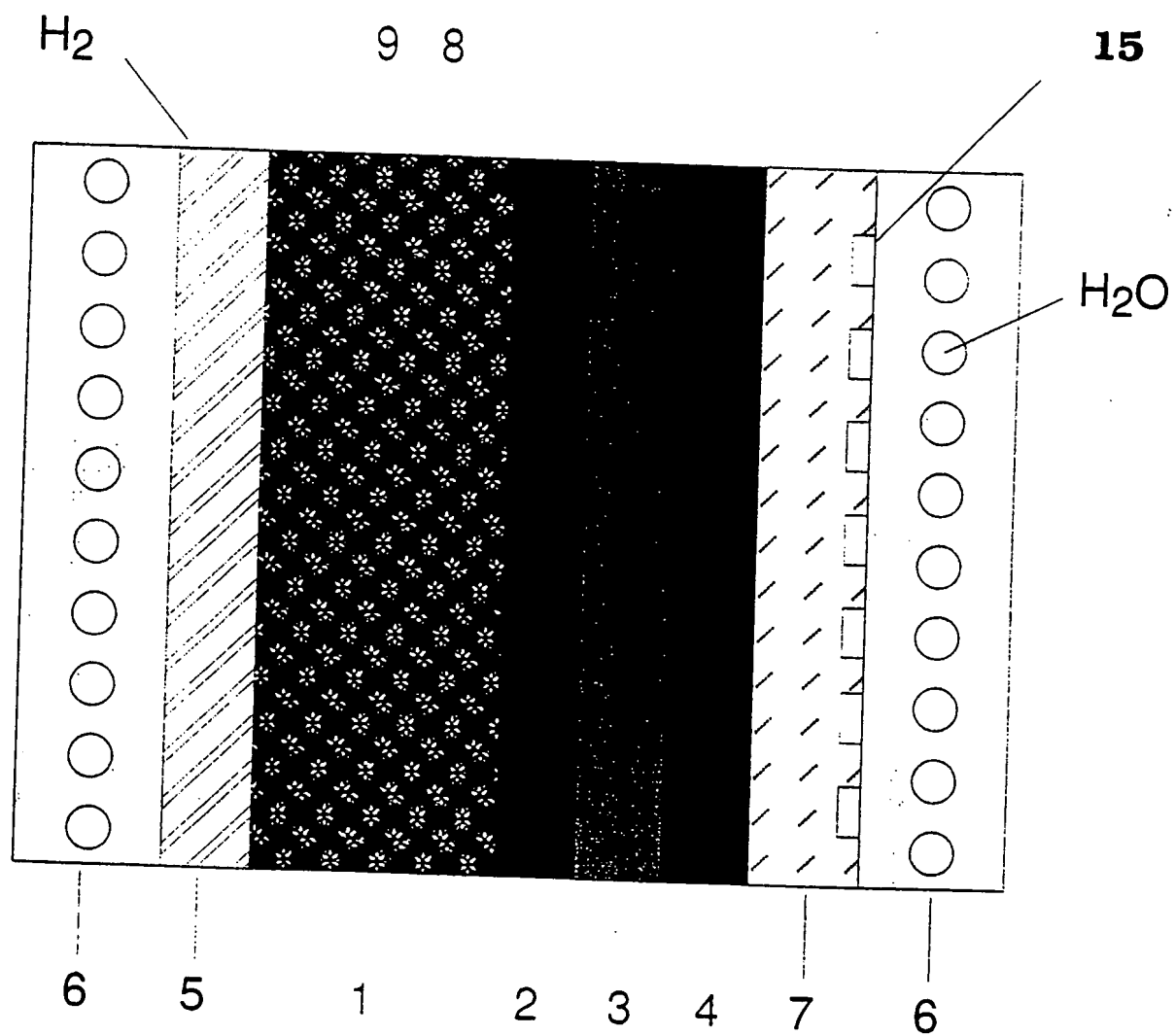


Fig. 2





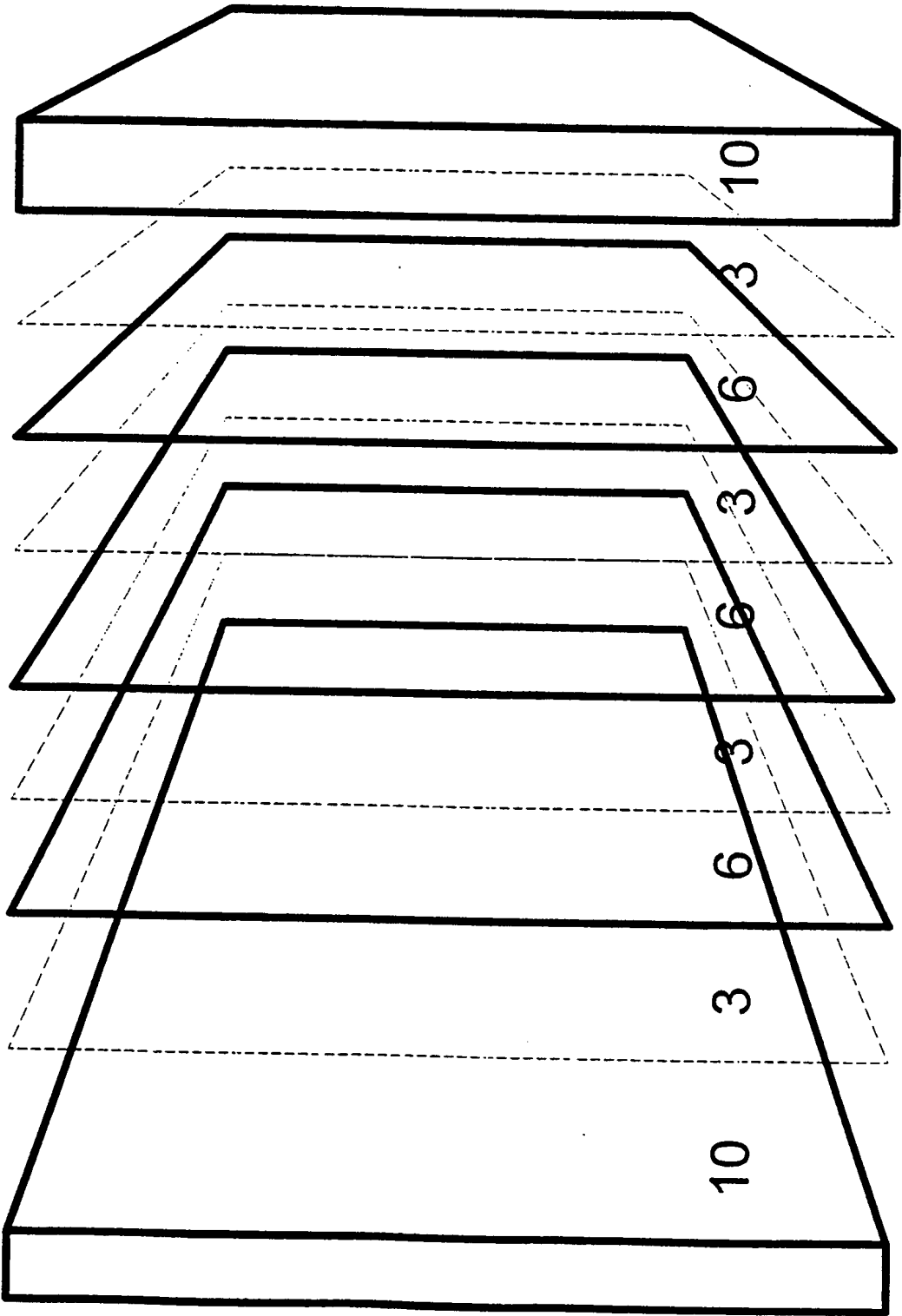


Fig. 3

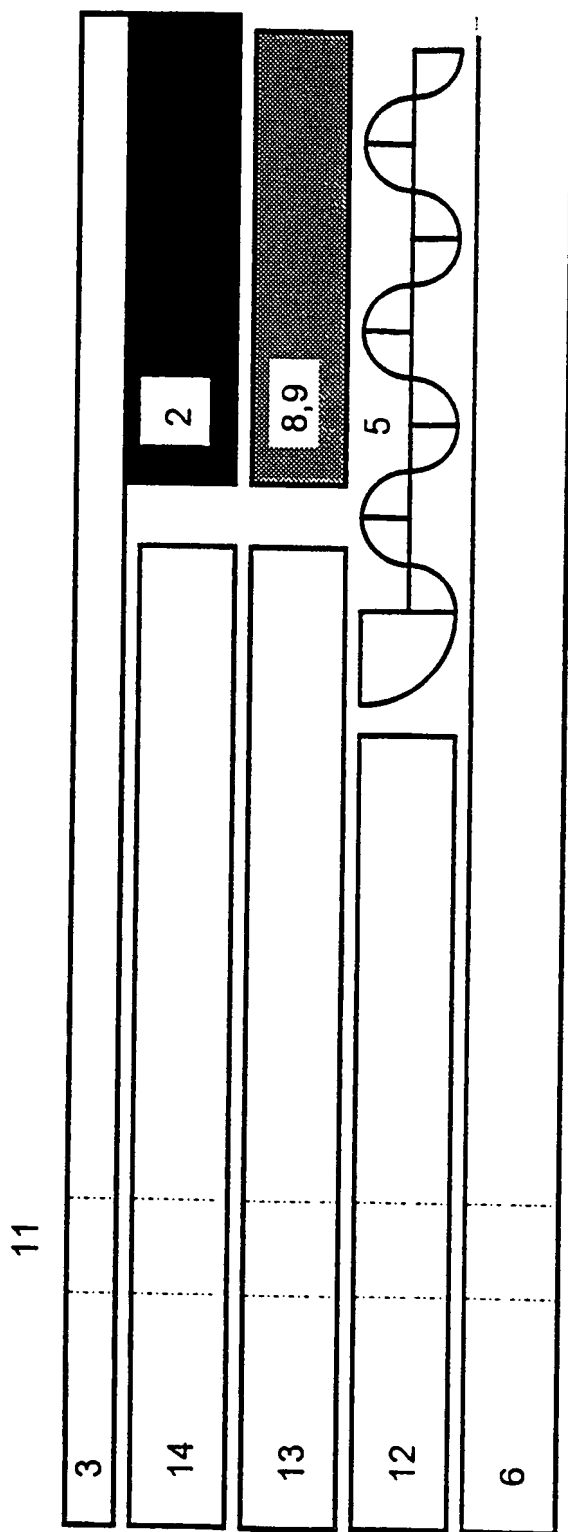


Fig. 4

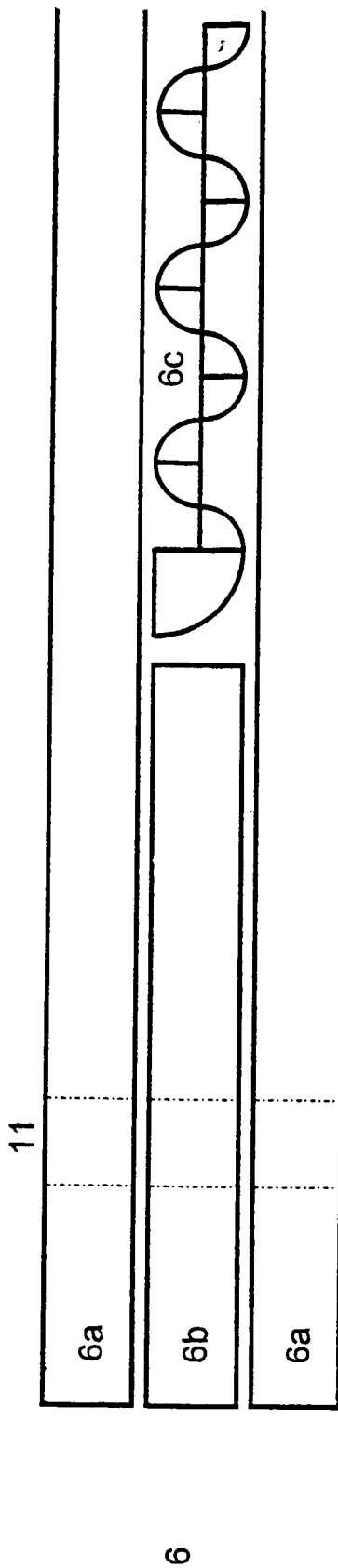


Fig. 5

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 98/01271

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 H01M8/24 H01M8/04 H01M8/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 5 360 679 A (BUSWELL RICHARD F ET AL) 1 November 1994 see figures 1,2 see column 2, line 25 - column 3, line 53 see column 10, line 3-37 ---	1-22
A	US 5 543 238 A (STRASSER KARL) 6 August 1996 see figure 1 see column 3, line 66 - column 5, line 30 ---	1-22
A	US 5 262 249 A (BREault RICHARD D ET AL) 16 November 1993 see the whole document ---	1, 15
	--- -/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

3 September 1998

Date of mailing of the international search report

15/09/1998

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Engl, H

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 98/01271

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 012, no. 080 (E-590), 12 March 1988 & JP 62 219471 A (TOKYO ELECTRIC POWER CO INC:THE;OTHERS: 02), 26 September 1987, see abstract ----	1, 15
A	US 5 573 866 A (VAN DINE LESLIE L ET AL) 12 November 1996 see the whole document -----	1, 15

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

In tional Application No

PCT/DE 98/01271

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5360679 A	01-11-1994	AU 668488 B AU 7631094 A CA 2146326 A EP 0671059 A JP 8502855 T WO 9506335 A	02-05-1996 21-03-1995 02-03-1995 13-09-1995 26-03-1996 02-03-1995
US 5543238 A	06-08-1996	CA 2142090 A WO 9403937 A DE 59205882 D EP 0654182 A JP 8500931 T	17-02-1994 17-02-1994 02-05-1996 24-05-1995 30-01-1996
US 5262249 A	16-11-1993	NONE	
US 5573866 A	12-11-1996	NONE	

<b>A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b> IPK 6 H01M8/24 H01M8/04 H01M8/06		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
<b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b> Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 6 H01M		
Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)		
<b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 5 360 679 A (BUSWELL RICHARD F ET AL) 1. November 1994 siehe Abbildungen 1,2 siehe Spalte 2, Zeile 25 - Spalte 3, Zeile 53 siehe Spalte 10, Zeile 3-37 ---	1-22
A	US 5 543 238 A (STRASSER KARL) 6. August 1996 siehe Abbildung 1 siehe Spalte 3, Zeile 66 - Spalte 5, Zeile 30 ---	1-22
A	US 5 262 249 A (BREAULT RICHARD D ET AL) 16. November 1993 siehe das ganze Dokument --- -/--	1,15
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen		
<input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Aussteilung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche <b>3. September 1998</b>		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts <b>15/09/1998</b>
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter <b>Engl, H</b>

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 012, no. 080 (E-590), 12.März 1988 & JP 62 219471 A (TOKYO ELECTRIC POWER CO INC:THE;OTHERS: 02), 26.September 1987, siehe Zusammenfassung ---	1,15
A	US 5 573 866 A (VAN DINE LESLIE L ET AL) 12.November 1996 siehe das ganze Dokument -----	1,15

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 98/01271

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5360679 A	01-11-1994	AU 668488 B	02-05-1996
		AU 7631094 A	21-03-1995
		CA 2146326 A	02-03-1995
		EP 0671059 A	13-09-1995
		JP 8502855 T	26-03-1996
		WO 9506335 A	02-03-1995
<hr/>			
US 5543238 A	06-08-1996	CA 2142090 A	17-02-1994
		WO 9403937 A	17-02-1994
		DE 59205882 D	02-05-1996
		EP 0654182 A	24-05-1995
		JP 8500931 T	30-01-1996
<hr/>			
US 5262249 A	16-11-1993	KEINE	
<hr/>			
US 5573866 A	12-11-1996	KEINE	
<hr/>			